

⑬ 日本国特許庁 (JP)

⑭ 特許出願公開

⑫ 公開特許公報 (A)

昭58—196277

⑮ Int. Cl.<sup>3</sup>

C 09 J 3/14

// C 08 F 220/30

識別記号

庁内整理番号

7102—4 J

7308—4 J

⑬ 公開 昭和58年(1983)11月15日

発明の数 1

審査請求 未請求

(全 4 頁)

⑭ 感圧接着剤組成物

紙株式会社神崎工場内

⑮ 特 願 昭57—79588

⑯ 出 願 昭57(1982)5月11日

⑰ 発 明 者 若田員義

尼崎市常光寺元町1の11神崎製

紙株式会社神崎工場内

⑱ 発 明 者 鈴木英明

尼崎市常光寺元町1の11神崎製

⑲ 発 明 者 南義次

尼崎市常光寺元町1の11神崎製

紙株式会社神崎工場内

⑳ 出 願 人 神崎製紙株式会社

東京都中央区銀座4丁目9番8

号

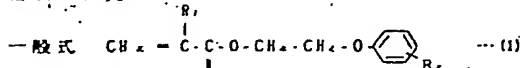
㉑ 代 理 人 弁理士 運見勝

明 細 書

1. 発明の名称 感圧接着剤組成物

2. 特許請求の範囲

炭素数4～10のアルキル基を有するアクリル酸エステル単量体または上記アクリル酸エステル単量体と炭素数3以下のアルキル基を有するアクリル酸（あるいはメタクリル酸）エステル単量体または／および酢酸ビニル単量体との混合物60～90重量％と、不飽和モノあるいはジカルボン酸単量体0.1～5重量％から成る組成に、更に、



(R<sub>1</sub> は H あるいは CH<sub>3</sub>、R<sub>2</sub> は H あるいは 1～4個の炭素原子を持つアルキル基)

で示される2-フェノキシエチル(メタ)アクリレート誘導体を5～35重量％配合し、共重合させたことを特徴とする感圧接着剤組成物。

3. 発明の詳細な説明

本発明は、凝集力を低下させることなく、無

極性被着体に対する接着力を向上させたアクリル酸エステル系の感圧接着剤組成物を提供するものである。

感圧接着剤は、粘着力、接着力および接着力の耐久性を支配する凝集力によって評価されている。因みに粘着力とは被着体への瞬間的な濡れ易さを示す力であり、接着力とは被着体からの剥離力であり、凝集力とは接着剤そのものが凝集する力である。而して感圧接着剤が実用的に十分な粘、接着特性を示すためには接着力及び凝集力が共に大きいことが望ましいのであるが、しかし一般的には粘着力、接着力と凝集力とは相反する性質で、接着力を向上させると凝集力が低下し、逆に凝集力を向上させると接着力が低下するという傾向が現われてくる。従って両者とも優れたところでバランスをとることは理想的であるが非常に難しい。そこで通常は接着剤の用途に応じて、接着力と凝集力のいずれが重視されるかを検討し、それによって対応させているようである。このことは一般に使用しているゴム系及びアクリル酸エステル系

(1)

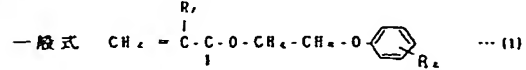
(2)

の接着剤に於ても同様にあてはまることである。

ところで、ゴム系の感圧接着剤は、ポリエチレンのような無極性のものを含め、大方の被着体に対して接着適性を有しているが、経時的に酸化劣化により粘着力、凝集力が低下するという難点がある。これに対してアクリル酸エステル系の感圧接着剤は、炭素数が4～10のアルキル基を有する高級アクリル酸エステルを基本組成とし、これに炭素数3以下の低級アルキル基を有するアクリル酸（あるいはメタクリル酸）エステル単量体または／および酢酸ビニル単量体を当量以下で併用したものに不飽和モノあるいはジカルボン酸単量体とを共重合させて構成されており、ゴム系のように酸化劣化するという問題はない。しかしポリエチレンのような無極性の被着体に対しては接着性に欠けるという難点がある。そこで本発明者等は、凝集力を低下させることなく、しかもポリエチレンのような無極性の被着体に対しても良好な接着力を発揮できるアクリル酸エステル系の感圧接着剤の開発について鋭意研究を行った結果、本

発明を開発したものである。

即ち本発明は、炭素数4～10のアルキル基を有するアクリル酸エステル単量体または上記アクリル酸エステル単量体と炭素数3以下のアルキル基を有するアクリル酸エステル単量体と炭素数3以下のアルキル基を有するアクリル酸（あるいはメタクリル酸）エステル単量体または／および酢酸ビニル単量体との混合物60～90重量％と、不飽和モノあるいはジカルボン酸単量体0.1～5重量％とから成る組成に、更に



(R<sub>1</sub> はHあるいはCH<sub>3</sub>、R<sub>2</sub> はHあるいは1～4個の炭素原子を持つアルキル基)

で示される2-フェノキシエチル（メタ）アクリレート誘導体を5～35重量％配合し、共重合させたことを特徴とするものである。

上記の構成で、(1)式で示される2-フェノキシエチル（メタ）アクリレート誘導体を除く組成は公知であって、前記のようにポリエチレンのような

(3)

無極性の被着体に対して接着力を欠いているが、しかしこれに(1)式で示される2-フェノキシエチル（メタ）アクリレート誘導体を配合して共重合させた場合に優れた接着性を示す理由は必ずしも明らかではないが、恐らく被着体への濡れ性がよくなり、界面に於ける接触状態が改善されるためではないかと考えられる。

而して、この(1)式で示される2-フェノキシエチル（メタ）アクリレート誘導体の他の組成物に対する配合量は、5～35重量％好ましくは15～25重量％の範囲に於て効果的である。因みにこの配合量が5重量％以下になると凝集力が低下し、剥離時に被着体に附残りが生じる。また35重量％以上になると凝集力が高くなり過ぎて粘着性が低下し、感圧接着剤として使用できなくなる。

本発明の構成で、(1)式で示される2-フェノキシエチル（メタ）アクリレート誘導体を除く組成部分では、炭素数4～10のアルキル基を有するアクリル酸エステル単量体が接着剤の基本組成をなすものであり、その具体的物質としては、アク

(5)

リル酸ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、アクリル酸オクチル等が使用される。しかしこれらの物質は、単独では粘性が低くて感圧接着剤として適性を欠いているため、一般的には、これに炭素数3以下のアルキル基を有するアクリル酸（あるいはメタクリル酸）エステル単量体または／および酢酸ビニル単量体を併用して粘性を高めるのが普通である。この場合の炭素数3以下のアルキル基を有するアクリル酸（あるいはメタクリル酸）エステル単量体としては、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸メチル等を一種又は二種以上を併用して使用してもよい。なおこれらの粘度調節剤を炭素数4～10のアクリル酸エステルに併用する場合は、接着力の低下を来さない為にも当量以下で使うことが望ましい。そして本発明に於て、これらの成分が全共重合組成物中で占める割合は、60～90重量％で、好ましくは70～80重量％になるように使用される。

不飽和モノあるいはジカルボン酸単量体として

(6)

は、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、マレイン酸等が使用され、これが全共重合組成物中で占める割合は、0.1～5重量%、好ましくは0.5～2重量%になるように使用されるのが普通である。

なお、本発明に於て、無極性被着体に対する接着性を低下させない程度に凝集力を引き上げるには、複数のエチレン性2重結合を有する単量体、例えばジアリルマレエート、エチレングリコールジメタクリレート、1,6-ヘキサジオールジアクリレートのようなグラフト交差剤、あるいはグリシジルメタアクリレート、ヒドロキシエチルアクリレート、N-メチロールアクリルアミドのような官能基含有単量体を一緒に共重合させることも支えない。

而して本発明の感圧接着剤組成物は、乳化重合、懸濁重合、溶液重合、塊状重合等の方法で重合できるが、一般的には乳化重合、溶液重合が好ましい。因みに、乳化重合法としては、アルキルフェノール、高級アルコールとエチレンオキシドの

付加物や、これを硫酸エステル化したもの、あるいはポリエチレンオキシドとポリプロピレンオキシドのブロックポリマーの如き乳化剤と、過硫酸カリ、過硫酸アンモニウム、過酸化水素の如き、水溶性の重合開始剤を含む水溶液中に、単量体あるいは単量体を上記乳化剤で乳化して添加する方法が採られる。また溶液重合法としては、ベンゼン、トルエンの如き芳香族系溶剤、アセトン、メチルエチルケトン等の如きケトン類、酢酸エチルのようなエステル類の溶剤中に単量体とアゾビスイソブチロニトリル、ベンゾイルパーオキシドなどの重合開始剤を加えて重合させる方法が採られる。

このようにして構成した本発明に係る感圧接着剤組成物には、必要に応じて、充填剤、可塑剤、粘着賦与剤、増粘剤、阻潤剤、消泡剤等の添加剤を併用することもできる。

斯くて、本発明に係る感圧接着剤組成物は、上質紙、キャストコート紙、合成樹脂フィルム、布等の支持体に塗布すれば、これまでのアクリル酸エ

(7)

(8)

ステル系感圧接着剤には欠けていたポリエチレンのような無極性の被着体に対しても、凝集力を低下させずに実用上良好な接着力を発揮する粘着シートを得ることができる。

以下に本発明を実施例を挙げて説明するが、本発明の範囲がこれらの実施例のみに限られないことは勿論である。

#### 実施例1

2-エチルヘキシルアクリレート320g、2-フェノキシエチルアクリレート76g、アクリル酸4g、n-ドデシルメルカプタン0.4g、ポリオキシエチレンニルフェノールエーテル系乳化剤5g、オキシエチレン・オキシプロピレンブロックポリマー系乳化剤5g、イオン交換水170ccからなる乳化単量体混合液(1)をつくる。攪拌機、温度計、遠流冷却器、滴下ロートを備えた容器中にイオン交換水240cc、上記乳化剤1:1混合物2g、過硫酸カリウム0.8g、を仕込み、窒素置換しながら加熱する。液温が70℃になったとき、(1)の乳化単量体混合液の1/6

を添加する。反応率が90%に達したら、残りの乳化単量体混合液(1)を2時間かけて添加し重合させる。添加終了後、70℃で2時間攪拌を継続し、反応を完結させる。

このようにして得たエマルジョンは固形分50%で粘度は100cpsであった。このエマルジョンをキャストコート紙(神崎製紙製、商品名「ミラコート」)に乾燥重量が25g/m<sup>2</sup>になるように塗布乾燥した。この接着剤塗布面にポリエチレンをラミネートした制刷紙を重ね、接合して粘着シートを作成した。このようにして得た粘着シートのポリエチレンに対する接着力及び凝集力は別表の通りであった。

#### 実施例2

実施例1と同様な方法で、2-エチルヘキシルアクリレート:2-フェノキシエチルアクリレート:酢酸ビニル:アクリル酸=80:14:5:1の割合で共重合させ、エマルジョンを得、同様な方法で粘着シートを作成した。このシートの接着力及び凝集力は別表の通りであった。

(9)

(10)

## 実施例 3

実施例 1 と同様な方法で、2-エチルヘキシルアクリレート：2-フェノキシエチルメタアクリレート：メチルアクリレート：アクリル酸 = 7.4 : 1.5 : 1.0 : 1 の割合で共重合させてエマルジョンを得、同様な方法で粘着シートを作成した。このシートの接着力及び凝集力は別表の通りであった。

## 実施例 4

実施例 1 と同様な方法で、2-エチルヘキシルアクリレート：2-(4-ブチルフェノキシ)-エチルアクリレート：アクリル酸 = 8.0 : 1.9 : 1 の割合で共重合させてエマルジョンを得、同様な方法で粘着シートを作成した。このシートの接着力及び凝集力は別表の通りであった。

## 比較例 1

実施例 1 と同様な方法で、2-エチルヘキシルアクリレート：メチルアクリレート：アクリル酸 = 8.0 : 1.9 : 1 の割合で共重合させてエマルジョンを得、同様な方法で粘着シートを作成した。

このシートの接着力及び凝集力は別表の通りであった。

## 比較例 2

実施例 1 と同様な方法で、2-エチルヘキシルアクリレート：エチルアクリレート：酢酸ビニル：アクリル酸 = 7.5 : 1.9 : 5 : 1 の割合で共重合させてエマルジョンを得、同様な方法で粘着シートを作成した。このシートの接着力及び凝集力は別表の通りであった。

## 比較例 3

実施例 1 と同様な方法で、2-エチルヘキシルアクリレート：メチルメタアクリレート：アクリル酸 = 6.8 : 3.0 : 2 の割合で共重合してエマルジョンを得、同様な方法で粘着シートを作成した。このシートの接着力及び凝集力は別表の通りであった。

(11)

(12)

(別 表)

	ポリエチレンに 対する剥離力 (g/25mm)	凝集力 (時間)
実施例 1	1100	7 以上
2	1100	7 以上
3	1000	7 以上
4	1000	6
比較例 1	600	1
2	700	0.5
3	500	1

□ の面積で張り付け、2 kg のローラで圧着後、貼付け面を垂直方向に保持し、試料に 1 kg の荷重を掛けて試料がずり落ちるまでを時間単位で測定した。

特許出願人 津崎製紙株式会社

接着力の測定法：JIS-Z-1538に準じ、20℃、60%RHの室内で、粘着シートを2kgのローラで2往復して張り付け、2時間後インストロン型引張り試験機により300mm/minの引張り速度で180°の角度に割した場合の接着力を測定した。

凝集力の測定法：ステン板に試料を2.5mm×2.5

(13)

(14)

(19) Japan Patent Office (JP)  
 (12) The Laid-open Patents Gazette (A)

(11) Patent  
 Application  
 58-196277

(51) Int. Cl.<sup>3</sup> Identification Code Internal Reference Numbers (43) Date of Publication: 15th  
 November 1983  
 C 09 J 3/14 7102-4J  
 //C 08 F 220/30 7308-4J  
 Number of Inventions: 1  
 Demand for Examination: not  
 requested  
 (Total 4 pages [in the  
 Japanese])

5

(54) Title of the Invention: Pressure-sensitive adhesive compositions.

(21) Application Number: 57-79588  
 (22) Date of Filing: 11th May 1982

(72) Inventor: Kazuyoshi WAKATA  
 c/o Kanzaki Kojo, Kanzaki Seishi Kabushiki-gaisha,  
 Jokoji Motomachi 1 no 11, Amagasaki-shi

(72) Inventor: Hideaki SUZUKI  
 c/o Kanzaki Kojo, Kanzaki Seishi Kabushiki-gaisha,  
 Jokoji Motomachi 1 no 11, Amagasaki-shi

(72) Inventor: Yoshitsugu MINAMI  
 c/o Kanzaki Kojo, Kanzaki Seishi Kabushiki-gaisha,  
 Jokoji Motomachi 1 no 11, Amagasaki-shi

(71) Applicant: Kanzaki Seishi Kabushiki-gaisha  
 (Kansaki Paper Manufacturing Company Limited)  
 Ginza 4-chome 9-ban 8-go, Chuo-ku, Tokyo-to

(74) Representative: Patent Attorney K. Hasumi

10

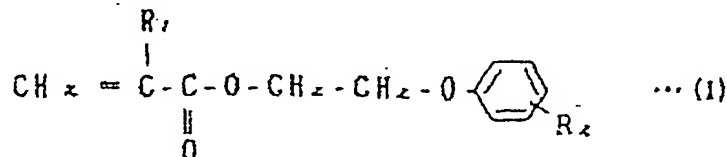
## SPECIFICATION

### 1. TITLE OF THE INVENTION

Pressure-sensitive adhesive compositions.

### 2. SCOPE OF THE PATENT CLAIM

- 15 1. Pressure-sensitive adhesive compositions,  
 characterized in that 5 to 35% by weight of a 2-  
 phenoxyethyl (meth)acrylate derivative, represented by  
 the general formula:



(R<sub>1</sub> is hydrogen or methyl and R<sub>2</sub> is hydrogen or an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms)

is compounded into a composition comprising: 60 to 90% by weight of a mixture of an acrylate ester monomer having an alkyl group of 4 to 10 carbons, or an above-mentioned acrylate ester monomer, and an acrylate (or methacrylate) ester monomer having an alkyl group of 3 or less carbons and/or a vinyl acetate monomer; and 0.1 to 5% by weight of an unsaturated mono- or dicarboxylic acid monomer; and further characterized in that the mixture is copolymerized.

### 3. DETAILED DESCRIPTION OF THE INVENTION

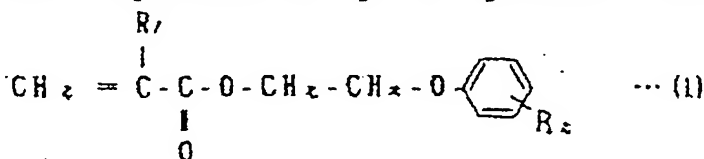
The present invention provides acrylate-based pressure-sensitive adhesive compositions with improved bond strength to non-polar adherends, without decreasing their cohesive strength.

Pressure-sensitive adhesives are appraised by means of cohesive strength, which governs adhesive strength, bond strength and durability of bond strength. In this connection: adhesive strength is the force which indicates the ease of instantaneous (illegible) towards the adherend; bond strength is the peeling force from the adherend; and cohesive strength is the force which coheres the adhesive. However, it is desirable, in order for pressure-sensitive adhesives to exhibit adequate adhesive and bonding properties, for both the bond strength and the cohesive strength to be large, but, in general, the adhesive strength, bond strength and cohesive strength are reciprocal properties, so that, when the bond strength is improved, a tendency appears for the cohesive strength to fall and, conversely, when the cohesive strength is improved, a tendency appears for the bond strength to fall. Hence a balance is ideally taken if both properties are to be better, but this is very difficult. Investigations are therefore usually made into either bond strength or

cohesive strength, corresponding to the applications of an adhesive, so that the applications are dealt with by this means. This fact applies similarly to the rubber-based and acrylate ester-based adhesives which are generally used.

Pressure-sensitive rubber-based adhesives have suitable bonding properties for the majority of adherends, including non-polar ones, such as polyethylene, but they have the weakness that their adhesive strength and cohesive strength fall with time, due to oxidative degradation. In contrast to this, acrylate ester-based adhesives have, as a base constituent, a higher acrylate ester having alkyl groups with 4 to 10 carbons; the adhesives are formed by copolymerizing this base constituent with an unsaturated mono- or dicarboxylic acid monomer, used in conjunction with an equivalent or less of an acrylate (or methacrylate) ester monomer having a lower alkyl group of 3 or less carbons and/or a vinyl acetate monomer; there are no problems with oxidative degradation as with rubber-based adhesives. However, there is the problem of poor bonding to non-polar adherends, such as polyethylene. The present inventors therefore developed the present invention, as a result of diligent investigations carried out into the development of acrylate ester-based pressure sensitive adhesives which can exhibit good bond strength to non-polar adherends such as polyethylene, without lowering cohesive strength.

That is, the present invention is characterized in that 5 to 35% by weight of a 2-phenoxyethyl (meth)acrylate derivative, represented by the general formula:



(R<sub>1</sub> is hydrogen or methyl and R<sub>2</sub> is hydrogen or an alkyl group having 1 to 4 carbon atoms)

is compounded into a composition comprising: 60 to 90% by weight of a mixture of an acrylate ester monomer having an alkyl group of 4 to 10 carbons, or an above-mentioned acrylate ester monomer, and an acrylate (or methacrylate) ester monomer having an alkyl group of 3 or less carbons and/or a vinyl acetate monomer; and 0.1 to 5% by weight of an unsaturated mono- or dicarboxylic acid monomer; and the mixture is copolymerized.

In the above-mentioned construction, when the 2-phenoxyethyl (meth)acrylate derivatives represented by formula (1) are excluded, the constituents are known; the bond strength of these constituents to non-polar adherends such as polyethylene is poor, as aforementioned; although the reason for the better bond strength when there is compounding in and copolymerization of a 2-phenoxyethyl (meth)acrylate derivative represented by formula (1) is not entirely clear, it is considered that it is perhaps because the (illegible) properties towards an adherend are improved and the state of contact at the surface is improved.

The quantities of 2-phenoxyethyl (meth)acrylate derivatives represented by formula (1) compounded into the other constituents are effective in the range 5 to 35% by weight, preferably 15 to 25% by weight. In this connection, if the quantity compounded is less than 5% by weight, the cohesive strength falls and a residue is produced on the adherend when peeling takes place. If the quantity compounded is greater than 35%, the cohesive strength is increased too much, the adhesive strength falls and the material cannot be used as a pressure-sensitive adhesive.



In the construction according to the present invention, in the portion of constituents other than a 2-phenoxyethyl (meth) acrylate represented by formula (1), the acrylate ester monomer which has alkyl groups of 4 to 10 carbons is that which comprises the base constituent of the adhesive; to be specific, butyl acrylate, 2-ethylhexyl acrylate and octyl acrylate may be used. However, since, when used singly, these substances have low viscosity, so that they have poor applicability as pressure-sensitive adhesives, in general, the viscosity is normally improved by the joint use with these substances of an acrylate (or methacrylate) monomer having an alkyl group of 3 or less carbons and/or a vinyl acetate monomer. In this case, one, two or more of methyl acrylate, ethyl acrylate, methyl methacrylate and the like may be jointly used as an acrylate (or methacrylate) monomer having an alkyl group of 3 or less carbons. When these viscosity regulating agents are jointly used with an acrylate ester having an alkyl group of 4 to 10 carbons, it is desirable to use an equivalent or less, so that no decrease in bond strength is produced. According to the present invention, the percentages of these components to be used in the total copolymer compositions are such that there is 60 to 90% by weight, preferably 70 to 80% by weight.

Acrylic acid, methacrylic acid, itaconic acid, maleic acid and the like may be used as unsaturated mono- or di-carboxylic acids and their percentages used in the total copolymer compositions are normally 0.1 to 5% by weight, preferably 0.5 to 2% by weight.

According to the present invention, it is allowable to copolymerize together monomers having a number of ethylenic double bonds, in order to somewhat increase the cohesive strength, without lowering the bond strength to non-polar adherends, for example: graft

cross-linking agents, such as diallyl maleate, ethylene glycol dimethacrylate and 1,6-hexanediol diacrylate; or functional group-containing monomers, such as glycidyl methacrylate, hydroxyethyl acrylate and N-methylol-  
5 acrylamide.

The pressure-sensitive adhesive compositions according to the present invention may be polymerized by processes such as emulsion polymerization, suspension  
10 polymerization, solution polymerization and block polymerization, but, in general, emulsion polymerization and solution polymerization are preferred. Processes which may be adopted as emulsion polymerization processes are processes wherein there  
15 are added monomers and emulsifiers, such as alkylphenols and adducts of higher alcohols and ethylene oxide, or sulphate esters of these, or block polymers of polyethylene oxide and polypropylene oxide, or there are added monomers emulsified with the above-  
20 mentioned emulsifiers, to aqueous solutions containing polymerization initiators, such as potassium persulphate, ammonium persulphate and hydrogen peroxide. Processes which may be adopted as solution polymerization processes are processes wherein a  
25 monomer and a polymerization initiator, such as azobisisobutyronitrile or benzoyl peroxide, are added to an aromatic solvent, such as benzene or toluene; a ketone solvent, such as acetone or methyl ethyl ketone; or an ester solvent such as ethyl acetate, and  
30 polymerization is carried out.

Additives, such as fillers, plasticizers, tackifiers, thickeners, wetting agents and antifoaming agents, may be added and jointly used, as required, with the  
35 pressure-sensitive compositions to which the present invention relates, when constituted in this manner.

The pressure-sensitive compositions to which the present invention relates can yield adhesive sheet which displays good bond strength with respect to everyday use, without lowering cohesive strength, to  
5 non-polar adherends, such as polyethylene, which had been a weakness of acrylate ester-based pressure-sensitive adhesives up to the present, if they were applied to supporting materials, such as fine quality paper, cast coat paper, synthetic resin films and cloth.

10

The present invention will be explained below by giving Examples of its execution, but the scope of the present invention is naturally not restricted solely to these Examples of its execution.

Example 1

An emulsified monomer mixture (I) was prepared, comprising 2-ethylhexyl acrylate (320 g), 2-phenoxyethyl acrylate (76 g), acrylic acid (4 g), n-dodecylmercaptan (0.4 g), polyoxyethylene nonylphenol ether-based emulsifier (5 g), oxyethylene/oxypropylene block polymer-based emulsifier (5 g) and ion-exchanged water (170 cc). Ion-exchanged water (240 cc) and a 1:1 mixture of the above-mentioned emulsifier (2 g) and potassium persulphate (0.8 g) were charged to a vessel fitted with a stirrer, thermometer, reflux condenser and dropping funnel and heated under nitrogen. When the temperature of the liquid became 70°C, 1/6 of the emulsified monomer mixture (I) was added. When the percentage reaction reached 90%, the remaining emulsified monomer (I) was added over 2 hours and polymerized. After completion of the addition, the reaction was finished by continuing stirring at 70°C for 2 hours.

The emulsion obtained in this manner had a 50% solid fraction and a viscosity of 100 Cps. This emulsion was applied to cast coat paper (Trade Name "Miracote", manufactured by Kanzaki), such that the dried weight was 25 g/m<sup>2</sup>. An adhesive sheet was manufactured by bonding by superimposing polyethylene and laminated peelable paper onto the surface to which the adhesive had been applied. The strength of adhesion and the cohesivity of the adhesive sheet thus obtained were as in the attached Table.

Example 2

2-Ethylhexyl acrylate:2-phenoxyethyl acrylate:vinyl acetate:acrylic acid were co-polymerized in the proportions 80:14:5:1, by the same process as that in Example 1, an emulsion was obtained and an adhesive sheet was manufactured by the same process. The strength of adhesion and cohesivity of the adhesive sheet thus obtained were as in the attached Table.

### Example 3

2-Ethylhexyl acrylate:2-phenoxyethyl methacrylate:methyl acrylate:acrylic acid were co-polymerized in the proportions 74:15:10:1, by the same process as that in Example 1, an emulsion was obtained and an adhesive sheet was manufactured by the same process. The strength of adhesion and cohesivity of the adhesive sheet thus obtained were as in the attached Table.

### Example 4

2-Ethylhexyl acrylate:2-(4-butylphenoxy)ethyl acrylate:acrylic acid were co-polymerized in the proportions 80:19:1, by the same process as that in Example 1, an emulsion was obtained and an adhesive sheet was manufactured by the same process. The strength of adhesion and cohesivity of the adhesive sheet thus obtained were as in the attached Table.

### Comparative Example 1

2-Ethylhexyl acrylate:methyl acrylate:acrylic acid were co-polymerized in the proportions 80:19:1, by the same process as that in Example 1, an emulsion was obtained and an adhesive sheet was manufactured by the same process. The strength of adhesion and cohesivity of the adhesive sheet thus obtained were as in the attached Table.

### Comparative Example 2

2-Ethylhexyl acrylate:ethyl acrylate:vinyl acetate:acrylic acid were co-polymerized in the proportions 75:19:5:1, by the same process as that in Example 1, an emulsion was obtained and an adhesive sheet was manufactured by the same process. The strength of adhesion and cohesivity of the adhesive sheet thus obtained were as in the attached Table.

### Comparative Example 3

2-Ethylhexyl acrylate:methyl methacrylate:acrylic acid were co-polymerized in the proportions 68:30:2, by the same process as that in Example 1, an emulsion was obtained and an adhesive sheet was manufactured by the same process. The strength of

adhesion and cohesivity of the adhesive sheet thus obtained were as in the attached Table.

(Attached Table)

	Peeling Strength versus Polyethylene	Cohesivity (hours)
<u>Example 1</u>	1100	≥7
<u>Example 2</u>	1100	≥7
<u>Example 3</u>	1000	≥7
<u>Example 4</u>	1000	6
<u>Comparative Example 1</u>	600	1
<u>Comparative Example 2</u>	700	0.5
<u>Comparative Example 3</u>	500	1

Method of Measuring Adhesive Strength:	According to JIS (Japanese Industrial Standard)-Z-1538, an adhesive sheet was adhered at 20°C, 60% relative humidity (RH) by means of 2 kg rollers and the adhesive strength was measured 2 hours later, when peeled at an angle of 180°, at a tensile rate of 300 mm/min, using an Instron model tensile tester.
Method of Measuring Aggregation Strength:	A sample was adhered to a sten plate with an area of 2.5 cm × 2.5 cm and pressure adhered with a 2 kg roller, after which the adhered surface was kept in a vertical position, a 1 kg load was suspended from the sample and the time until the sample slipped down was measured.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☒ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☒ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**